第 51 卷 第 6 期
2015 年 6 月 第 724-732 页
金属学报
ACTA METALLURGICA SINICA
Vol.51 No.6
Jun. 2015 pp.724-732

W辐照损伤初期的分子动力学研究*

姚 曼[1)] 崔 薇[1)] 王旭东[1)] 徐海譞[2)] PHILLPOT S R[3)]

1) 大连理工大学材料科学与工程学院, 大连 116024
2) Department of Materials Science and Engineering, University of Tennessee, Knoxiville, TN37996, USA
3) Department of Materials Science and Engineering, University of Florida, Gainesville, FL 32611, USA

摘 要 运用分子动力学方法, 探究bcc-W在中子辐照初期, 由辐照诱发的缺陷形成和演化的微观过程的原子机制. 选取初始碰撞原子(PKA)能量1.0~25.0 keV, 模拟温度范围100~900 K, 研究W中位移级联产生的缺陷数量及分布, PKA方向和温度对稳定Frenkel pairs数的影响, 缺陷团簇以及W的离位阈能. 结果表明, 若级联诱发的缺陷在峰值阶段呈近球形密集分布, 稳定阶段Frenkel pairs数相对较少, 若缺陷呈非球形相对分散分布, 稳定阶段Frenkel pairs数相对较多; 稳定Frenkel pairs数受PKA方向的影响不大, 且随温度升高有下降趋势; 比较而言, 间隙原子团簇分数比空位团簇分数高, 而空位团簇倾向于形成较大的团簇; W的平均离位阈能受温度影响较小, 并具有一定的各向异性.

关键词 W, 分子动力学, 位移级联, 稳定Frenkel pairs数, 离位阈能

中图法分类号 TG132 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2015)06-0724-09

MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION OF INITIAL RADIATION DAMAGE IN TUNGSTEN

YAO Man [1)], CUI Wei [1)], WANG Xudong [1)], XU Haixuan [2)], PHILLPOT S R [3)]

1) School of Materials Science and Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116024
2) Department of Materials Science and Engineering, University of Tennessee, Knoxiville, TN37996, USA
3) Department of Materials Science and Engineering, University of Florida, Gainesville, FL 32611, USA

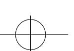
Correspondent: YAO Man, professor, Tel: (0411)84707347, E-mail: yaoman@dlut.edu.cn

Supported by National Natural Science Fundation of China (Nos.21233010 and 51004012)

Manuscript received 2014-09-04, in revised form 2015-03-27

ABSTRACT Tungsten is a candidate material for the first wall and divertor in a tokamak fusion reactor, in which it is required to withstand a high neutron irradiation. The defects created in cascade form the primary state of damage and their subsequent evolution gives rise to important changes in their microstructures and engineering properties. However, the evolution and aggregation of radiation-induced defects in atomic level can not be observed by experiments up till now. In this work, molecular dynamics (MD) method was used to explore the microstructural processes and atomic mechanism of the formation and evolution of defects in the initial stage of radiation in bcc-W. The range of primary knock-on atom (PKA) energies is 1.0~25.0 keV, and simulation temperature range from 100 to 900 K. The number and distribution of defects produced by displacement cascades have been studied; the influence of PKA direction and temperature on the number of steady Frenkel pairs has also been researched; defect clusters and the threshold energy have been simulated. The results showed that for morphology distribution of defects induced in the peak time of cascade, the more intensive the defects are, the less the steady Frenkel pairs numbers are, on the contrary, the more decentralized the defects are, the more the steady Frenkel pairs numbers are; the number of steady Frenkel pairs is insensitive to PKA direction, but has a trend to decline with

*国家自然科学基金项目21233010和51004012资助
收到初稿日期: 2014-09-04, 收到修改稿日期: 2015-03-27
作者简介: 姚 曼, 女, 1962年生, 教授, 博士
DOI: 10.11900/0412.1961.2014.00492



the temperature elevating; the percentage of interstitial clusters is higher than that of the vacancy clusters, while vacancies tend to form larger clusters; the average threshold energy of W is less affected by temperature and has certain anisotropy. The results of this work can provide data for analyzing the behavior of W material under nuclear environment.

KEYWORDS W, molecular dynamics (MD), displacement cascade, steady Frenkel pairs number, displacement threshold energy

无论在 International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) Tokamak 或未来的 Demonstration Fusion Reactor (DEMO)聚变反应堆中, 第一壁都要承受很高的中子通量(2.5×10^{22} n/cm^2)和严苛条件下高的热通量(10 MW/m^2, ITER)[1]. 因此, 第一壁的保护层材料, 所谓的面向等离子体材料, 必须依据此材料在恶劣辐射条件下的性能进行选择. W 由于其高热导率、低溅射率、高熔化温度[2]和低氢滞留量[3]等优点成为未来聚变堆中面向等离子体材料的领先候选材料; 偏滤器可以清除等离子体中的 H 同位素、He 和杂质, 与第一壁的保护层一样, 它也倾向于由 W 或钨合金制成, 并且如今已有全 W 材料制作的偏滤器; 在 He 冷却偏滤器的设计中, W 也被考虑为结构材料[4]. 因此, 了解 W 在辐照条件下的性能是关乎核能发展的一个至关重要的问题. 但是, 辐照诱发点缺陷的形成与聚集发生在皮秒(ps)和纳米(nm)时空尺度, 这种尺度发生的现象目前尚没有实验手段可测得, 因此, 计算机模拟在对辐照效应的研究中发挥了关键作用[5]. 其中, 分子动力学(molecular dynamics, MD)方法被普遍使用, 它不但可以提供原子动态过程的细节, 并可以将结构演化作为时间的函数, 而且, 它能描述的空间和时间尺度与辐照引发的位移级联的空间和时间尺度一致.

当辐照中子进入材料晶格当中时, 会将部分能量转移给 W 原子, 此 W 原子即为初始碰撞原子(primary knock-on atom, PKA), PKA 会在 W 中引发一系列的碰撞, 称为级联碰撞, 结果产生辐照位移损伤, 形成间隙原子和空位缺陷对(Frenkel pairs)、空位团簇、间隙原子团簇以及位错环、空位四面体等辐照缺陷. 在辐照损伤的初期阶段, 级联碰撞首先会产生大量的 Frenkel pairs, 并在短时间内达到峰值, 之后在热峰的作用下, Frenkel pairs 逐渐减少并趋于稳定[6]. 近年来, W 由于其潜在的优异性能被日渐重视, Xu 等[7]利用 MD 研究了辐照后 W 的空位扩散行为, 发现空位迁移阈能和 W 原子反冲能量依赖于 PKA 方向, 并且反冲原子不仅与最近邻空位作用, 也会与第二近邻的空位作用. Li 等[8]利用 MD 研究不同温度下, 低能量(20.0~200.0 eV) He 原子轰击 W 表面的辐照损伤, 发现低于通常认为的阈能也能引发 W 表面损伤, 并且提高衬底温度会增加 W 原子在表面产生堆垛的可能性, 这种表面损伤的最可能的能量范围是 50.0~80.0 eV. Caturla 等[9]研究了 W 在 1.9 GeV 质子辐照下的级联效率和缺陷分布, 结果表明, W 中的空位是独立的, 在 30.0 keV 的 PKA 作用下没有空位团簇生成. Troev 等[10]通过模拟正电子寿命量子机制计算来研究包含 H 和 He 的 W 中的缺陷性质, H 和 He 原子被吸收在 W 的空位和纳米空洞中, 而 H 和 He 在较大的纳米空洞中的存在大大降低了正电子寿命. Park 等[11]研究了哑铃型间隙原子的分布方向等信息, 得出稳定阶段的哑铃型间隙原子都沿着[111]方向, 并且在辐照损伤过程中, [111]方向的哑铃型间隙原子比其他方向更快与空位复合. 随着 W 材料的关注度不断提升, 人们需要更加深入了解 W 在辐照条件下的缺陷形成机制和各种性能, 这对核事业的发展具有重要意义.

本工作利用分子动力学方法, 从微观原子尺度上系统地认识 W 在中子辐照条件下诱发的空位、间隙原子及其团簇的形成机制, 计算缺陷数量及分布, 分析温度、辐照能量、PKA 入射方向等因素的影响规律. 另外, 本工作还计算了 W 的离位阈能 E_d.

1 计算方法与条件

W 有 α 和 β 2 种变型. 在标准温度 0 ℃ (273.15 K)和常压(1.01×10^5 Pa)下, α 型 W 是稳定的 bcc 结构. β 型 W 只有在有氧存在的条件下才能出现, 它在 630 ℃以下是稳定的, 在 630 ℃以上又转化为 α 型 W, 并且这一过程是不可逆的. 本工作研究对象为 α 型 W, 即 bcc-W.

本工作运用分子动力学方法研究 bcc-W 在辐照损伤初期缺陷的形成和演化. PKA 能量 E_{PKA} 由 W 原子(质量 m_2)与中子(能量 E_{01}, 质量 m_1)的弹性碰撞公式 $E_{PKA}=4m_1m_2E_{01}/(m_1+m_2)^2$ 得到, 大致关系为 $E_{01}=46.05\ E_{PKA}$, 所以本工作研究的最大 PKA 能量为 25.0 keV, 大约对应 1151.25 keV 中子能量. 聚变堆中 14.0 MeV 中子能量大约对应 306.0 keV 的 PKA 能量[12], 快中子在 W 中传递给 PKA 原子的能量范围

在1.0到100.0~200.0 keV之间, 并且聚变材料产生的大部分缺陷都是小于100.0 keV的PKA能量的作用[3]. 根据现有计算条件, 本工作的PKA能量设定为1.0~25.0 keV, 而针对不同PKA能量, 模拟体系大小包含约20000~130000个原子. 模拟的PKA入射方向主要为[100]和[135]; 模拟温度为100, 500和900 K. 势函数则采用ZBL势函数[13]与Lee等[14]提出的2NN MEAM势函数进行耦合, 从而能够更好地重现高能粒子间的碰撞问题, 文献[15]中也采用此类型势函数.

首先将模型在设定好目标温度的等温等压系综(NPT)下弛豫约10 ps, 使体系能量达到所设条件下的最低状态, 获得稳定结构(结构1), 将这个结构作为缺陷分析的参考结构. 然后, 将结构1中某一原子选定为PKA, 并给该原子按照设定的模拟能量和方向重新赋一个初始速度, 其他原子的速度和方向不变, 并将此结构(结构2)作为辐照损伤模拟的初始结构, 在正则系综(NVT)下进行一定时间的级联碰撞模拟. 一个单独级联的模拟时间取决于模拟体系和PKA能量的大小以及势函数, 本工作模拟发生在10~30 ps内的原子运动行为. 体系外部采用Berendsen热浴来将模拟体系的温度维持在本工作设定的模拟温度, 整个模拟体系采用周期性边界条件. 辐照结束后对所得结果进行统计分析, 主要通过晶格匹配分析方法(lattice matching analysis, LMA)[16]确定体系内级联碰撞诱发点缺陷的数目及分布情况. 在一个确定的能量和温度的条件下进行至少6次不同PKA的模拟, 之后对模拟结果进行统计平均.

离位阈能E_d即转移给晶格原子使之发生离位并产生永久缺陷的最小能量, 对于E_d的计算, 本工作的模型包含4032个原子, 共计算了3个温度(100, 500和900 K), 3个方向([100], [110]和[111])下的E_d. 在确定一个温度和一个方向的条件下, 对选定的PKA原子施加一定区间的能量, 此区间大小为15 eV, 以1 eV递增, 在此能量区间, 将产生一个稳定Frenkel pair所对应的最小PKA能量定义为该原子在所选方向上的E_d, 这种模拟共进行75次, 每次选取不同的PKA, 之后将75次计算取平均值作为W在该温度和该方向下的E_d. 其他温度和方向的计算也如上所述, 对E_d的计算总次数为675次.

2 计算结果与分析

2.1 W辐照过程的Frenkel pairs随时间演化及形态分布

图1所示为W的Frenkel pairs在不同PKA能量

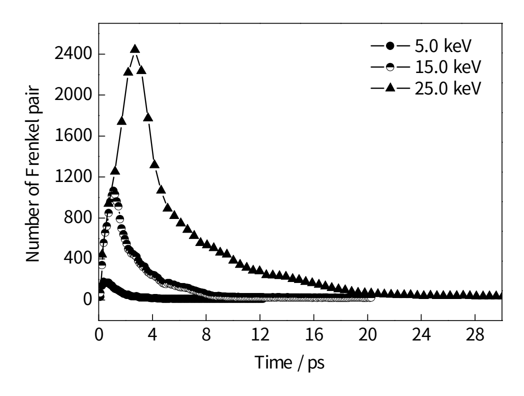


图1 100 K时不同初始碰撞原子(PKA)能量下辐照诱发Frenkel pairs数量随时间的演化曲线

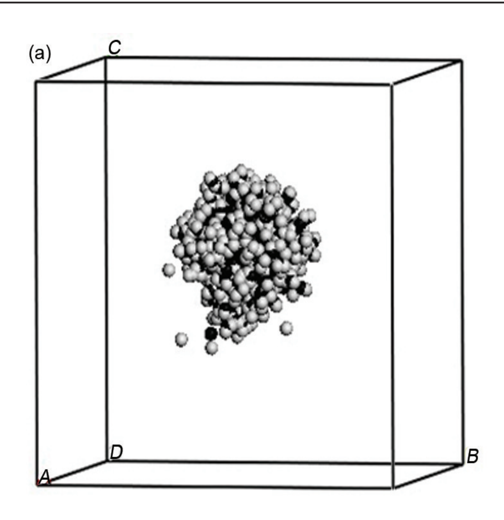
Fig.1 Evolution curves of number of Frenkel pairs with time in displacement cascade caused by a set of primary knock-on atoms (PKAs) with various energies at 100 K

(5.0, 15.0和25.0 keV)下随时间的演化曲线. 曲线的特征与之前研究结果[6,12,15]一致. 在初始时刻, Frenkel pairs迅速增加并达到峰值(弹道相阶段), 然后快速下降(回复阶段), 之后到达稳定阶段(10~30 ps). 可以看出, 达到峰值和稳定状态的时间都随PKA能量(1.0~25.0 keV)的增加而增加.

图2所示为PKA能量为10.0 keV时, 点缺陷分别在峰值时刻和稳定阶段的Frenkel pairs分布图. 黑色原子代表空位, 主要分布在级联中心处; 白色原子代表间隙原子, 多数分布在级联中心的边缘. 可以看出, 级联碰撞经过峰值阶段之后, 在热峰的作用下大量间隙原子与空位发生复合重组, 使Frenkel pairs数迅速下降, 最终在稳定阶段留下较少的Frenkel pairs.

模拟结果显示, 从能量超过10.0 keV开始, 不同PKA引发的缺陷峰值阶段的级联分布形态变化程度变大, 这会影响最终Frenkel pairs的数量和分布, 如图3所示. 总体来讲, 峰值缺陷形态大致分为2种: 近球形密集型和非球形相对分散型. 如果峰值时刻缺陷呈现近似球形的密集分布, 那么通常峰值缺陷数目比较多, 由于空位和间隙原子的分离距离较近, 热峰作用时间较长, 使缺陷复合相对容易, 导致稳定阶段Frenkel pairs相对较少的几率大, 如图3a所示; 若峰值时刻缺陷呈现非球形的相对分散分布, 那么峰值缺陷数目相对少, 热峰阶段也会相对短, 且间隙原子与空位分离距离较远, 不利于缺陷的复合, 导致残留较多的Frenkel pairs, 如图3b所示; 且这种趋势受PKA方向的影响不明显.

峰值时刻缺陷为非球形相对分散型时, 有时还



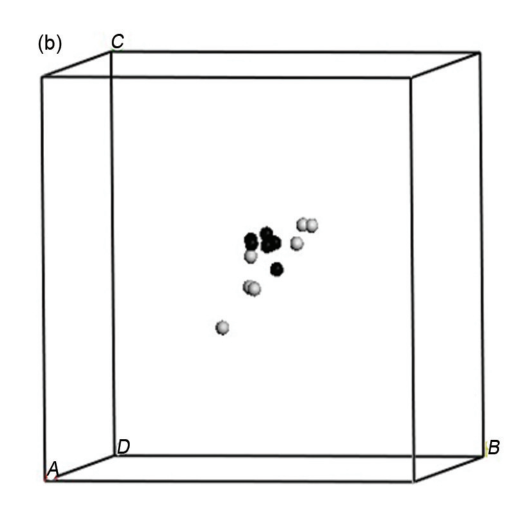


图 2 100 K 下 PKA 能量为 10.0 keV, PKA 沿[135]晶向的级联碰撞中不同时刻 Frenkel pairs 的分布情况

Fig.2 Distributions of radiation-induced Frenkel pairs in different moments at 100 K (The PKA energy is 10.0 keV and the PKA velocity direction is parallel to the crystallographic direction [135] of bcc-W, black balls represent the vacancies and white balls the interstitials)

(a) peak time 1.04 ps (b) steady stage 12.22 ps

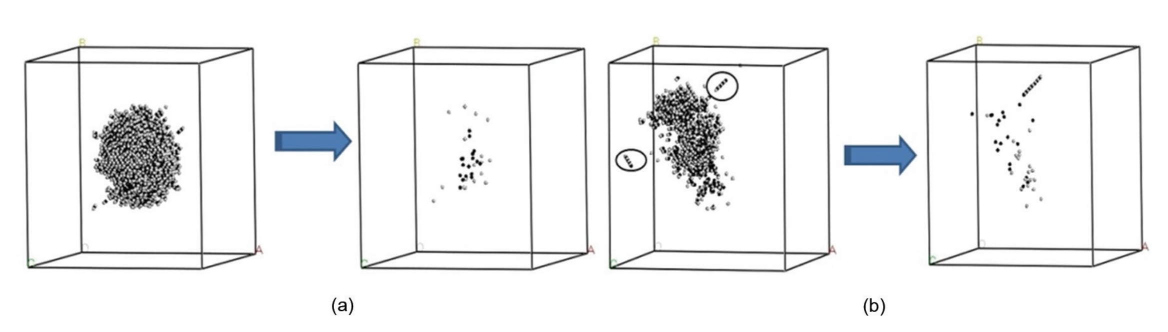


图 3 100 K 下 PKA 能量为 20.0 keV 时峰值时刻不同形态下的 Frenkel pairs 的分布情况

Fig.3 Distributions of radiation-induced Frenkel pairs at peak time in different morphologies at 100 K (The PKA energy is 20.0 keV, the PKA velocity direction is parallel to the crystallographic direction [135] of bcc-W, and in the circles the alternating sequence of interstitials and vacancies are shown)

(a) dense morphologies, the number of Frenkel pairs in peak time: 2631, the number of Frenkel pairs in steady stage: 23

(b) dispersed morphologies, the number of Frenkel pairs in peak time: 829, the number of Frenkel pairs in steady stage: 32

可观察到沿密排[111]方向的空位和间隙原子交替序列, 如图 3b 中圆圈部分所示, 间隙原子通过这种形式迁移到远离级联中心的位置, 使此部分间隙原子不易被复合, 也会导致 Frenkel pairs 较多.

2.2 稳定阶段 Frenkel pairs 数

本工作计算的稳定阶段 Frenkel pairs 数 N_{FS} 与 PKA 能量的关系如图 4 所示, 符合 Bacon 等[17]推荐的经验公式:

$$N_{FS} = aE_{PKA}^{b} \tag{1}$$

式中, a 和 b 是受辐照材料的种类和温度影响较小的常量, 将 MD 数据进行拟合后, a=3.433, b=0.697, 与文献[3] (a=3.706, b=0.590) 和文献[9] (a=3.335, b=0.602) 等的研究结果相似. 图 4 也显示了利用 Norgett-Robinson-Torrens (NRT) 公式[18]来估算 W 辐照后的 Frenkel pairs 个数 $N_{FS(NRT)}$:

$$N_{FS(NRT)} = 0.8E_{dam}/(2E_{d}) \tag{2}$$

式中, 取 $E_{dam}≈E_{PKA}$, 尽管 E_{dam} 是指损伤能量而不是 PKA 能量, 但 MD 模拟不考虑电离能损, 所以用 E_{PKA} 近似代替 E_{dam} 来比较 MD 模拟所得的 N_{FS} 预测值是合适的[15,17]. E_d 选取为 85 eV[12,19].

由图 4 可知, 与 NRT 预测值相比, MD 模拟的级联产生的 N_{FS} 显著降低, 这是因为级联产生的间隙原

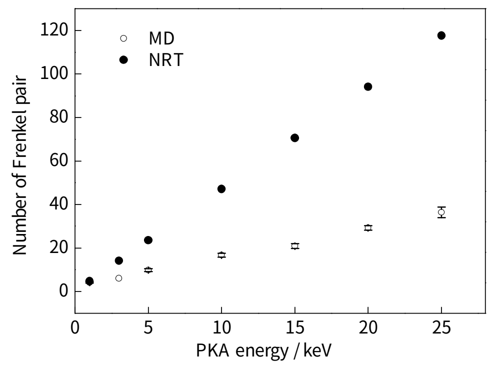


图4 稳定Frenkel pairs数随PKA能量变化

Fig.4 Numbers of survival Frenkel pairs at steady stage as a function of PKA energy (Solid dots represent the numbers of steady Frenkel pairs estimated by Norgett- Robinson- Torrens (NRT) formula $N_{FS(NRT)}$, the hollow circles are the values simulated by molecular dynamics (MD) N_{FS}, the bars represent the standard deviations)

子只有很小一部分是通过聚焦碰撞链的形式迁移到远处, 而大多数的间隙原子产生于级联不规则区域的边缘, 这些间隙原子与缺陷中心的空位距离非常近, 并且热峰阶段级联缺陷中心有很高的动能, 有助于间隙原子和空位的复合, 以致产生的Frenkel pairs显著减少, 文献[12]计算的W和文献[17]中介绍的Fe, Cu, Zr等多种金属得到相类似的结果. 由这2种估计材料辐照损伤缺陷的方法引出了级联效率.

级联效率定义为 $\eta=N_{FS}/N_{FS(NRT)}$[3,17]. 随着PKA能量的增大, 级联效率呈降低趋势, 最终趋于稳定, 约为0.3 (图5), 与文献[19]所得值相符, Bacon等[20]的研究也表明, 不同金属的级联效率通常稳定在0.2~0.4.

2.3 N_{FS}与PKA入射方向关系

众所周知, 晶体中不同晶向原子的排列周期及疏密程度有一定差异, 致使其性能具有各向异性, 因此, 在级联碰撞中bcc-W也将显示出辐照性能的各向异性. 表1为W在不同方向的PKA作用下, 稳定阶段体系中的Frenkel pairs数和Frenkel pairs数随方向的浮动情况.

Frenkel pairs个数的浮动采用以下公式计算:

$$F=100\%\times(N_i-N_{ave})/N_{ave} \qquad (3)$$

式中, F代表Frenkel pairs数随不同PKA方向的浮动, N_i代表每个方向的稳定Frenkel pairs数, N_{ave}代表5个方向Frenkel pairs数的平均值. 结果表明, 数据浮动最大只有10%左右, 如表1所示. 可以看出, 本工作研究的5个方向的稳定Frenkel pairs个数在3.0 keV

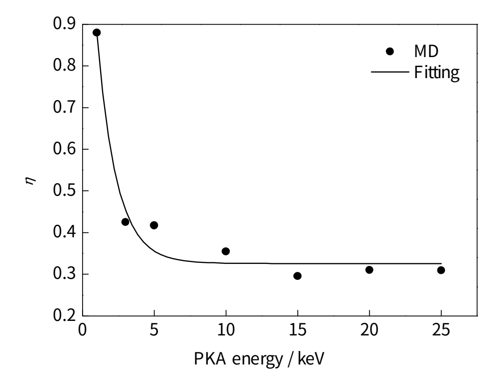


图5 级联效率η随PKA能量的变化

Fig.5 Cascade efficiency η as a function of PKA energy

表1 100 K, E_{PKA}为3.0 keV时不同PKA方向下单晶W中级联碰撞诱发稳定Frenkel pairs数和浮动情况

Table1 Number and its floating of Frenkel pairs at steady stage along various crystallographic directions of bcc-W with PKA energy of 3.0 keV at 100 K

PKA direction	N_{FS}	F
[100]	7.00±0.02	–4.4%
[110]	6.90±0.22	–5.8%
[111]	6.67±0.02	–8.9%
[112]	7.97±0.04	8.9%
[135]	8.07±0.14	10.2%

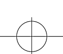
Note: N_{FS}—number of Frenkel pairs, F—floating of Frenkel pairs

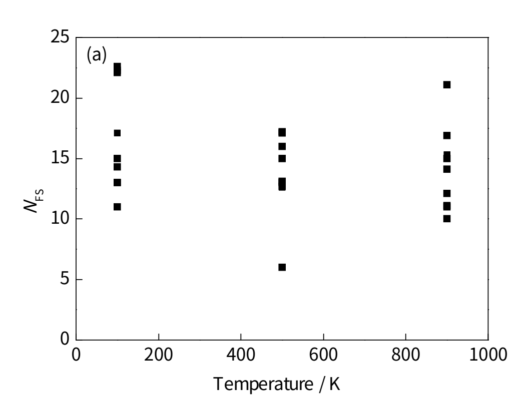
能量下相差很小.

所以在低能量下, PKA方向对bcc-W级联碰撞稳定阶段Frenkel pairs数没有明显影响. 文献[21]在PKA能量为0.3~5.0 keV对hcp-Ti进行的计算研究, 以及文献[16]均获得类似结果. 需要指出的是, 为了增强模拟结果的准确性, 本工作在每个方向下进行至少3次不同PKA的模拟, 对模拟结果进行统计平均.

2.4 N_{FS}与温度的关系

为研究温度对辐照缺陷产生的影响, 本工作在PKA能量3.0 keV, 温度分别为100, 500和900 K下进行模拟, 每个温度下进行9次计算, 结果如图6a所示. 可以看出, N_{FS}随温度的升高有轻微下降. 为了在不同能量下验证, 又计算了5.0, 10.0以及15.0 keV下的情况, 如图6b所示. 总体来看, N_{FS}随着温度的升高大致呈略微下降趋势, 与文献[12,22,23]得到的结果相似, 下降幅度在7%~40%之间. 这可能是因为温度升高的同时增加了W原子活动性与热峰持续时间, 两者在一定程度上促进了间隙原子与空位的





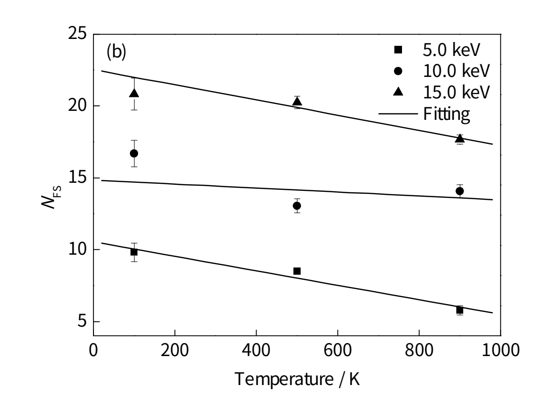


图 6 N_{FS}随温度的变化

Fig.6 N_{FS} at steady stage in cascade simulations with PKA energies of 3.0 keV (a) and 5.0~15.0 keV (b) at various temperatures 100~900 K of bcc-W

复合, 使更多缺陷复合湮灭, 从而减少稳定阶段留存的Frenkel pairs数. 另外一个可能的原因是温度升高使级联中的换位碰撞序列(replacement collision sequence, RCS)长度变短, 导致级联趋向于以紧密的形式存在, 从而使空位和间隙原子分离的距离较小, 有助于复合作用的发生.

2.5 缺陷团簇

缺陷团簇影响点缺陷的迁移方向和难易, 还可能影响点缺陷在级联中的回复和湮灭以及材料辐照后的性能演化, 所以团簇的作用不可小视. 团簇分数f_{cl}是指形成缺陷团簇的缺陷个数N_{cl}与此类型缺陷的总的缺陷数N_{tot}的比值:

$$f_{cl}=N_{cl}/N_{tot} \tag{4}$$

例如, 间隙原子团簇分数f_{cli}为形成间隙原子团簇的间隙原子个数N_{cli}与间隙原子总个数N_{toti}的比值. 图7所示为100 K下, 稳定阶段f_{cli}与空位团簇分数f_{clv}随PKA能量的变化.

由图7可知, 缺陷团簇分数大致在0.15~0.40之间, 与文献[12,19,22]相似, 团簇分数不高,可见, W中大部分缺陷仍以单缺陷的形式存在, 但相比之下, 大部分情况下f_{cli}高于f_{clv},与文献[3,12,19]结果一致. 以上研究表明, 单个间隙原子或间隙原子团簇中大部分原子在MD模拟的时间尺度内都具有很高的活动性. 据文献报道, W原子的迁移激活能在[111]方向为(0.03±0.002) eV[24], (0.047±0.01) eV[25], 0.03 eV[22]和0.061 eV[25], 而W的空位迁移能为1.44 eV[22], 1.78 eV[26]和2.054 eV[25], 空位平均迁移能为(3.1±0.05) eV[7], 由此可见, 间隙原子迁移能要远远小于空位迁移能, 而迁移能小使迁移更加容易, 从而更易聚集形成团簇, 并且已有研究表明, 空位一旦形成便不易移动, 例如Fikar等[22]在1000 K时, 在一个大体系中

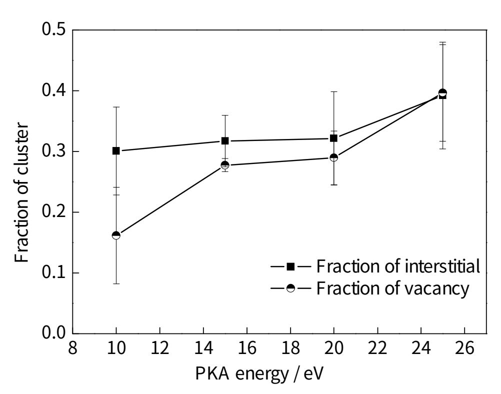


图7　100 K下稳定阶段间隙原子团簇分数f_{cli}与空位团簇分数f_{clv}随PKA能量的变化

Fig.7 Fractions of interstitials f_{cli} and vacancies f_{clv} via PKA energy (10.0~25.0 keV) at 100 K at steady stage

引进1个Frenkel pair, MD模拟进行50 ps时, 间隙原子沿[111]方向迁移15个晶格距离, 空位没有发生移动; Bai等[27]对Cu的研究也得出空位不易移动的结论. 本工作也对级联过程稳定阶段进行了可视化, 发现W的空位形成后基本不发生移动(图8). 所以间隙原子可能会凭借迁移较易的优势更易形成团簇.

本工作计算结果还显示, 在低能量 (小于5.0 keV) PKA的作用下, 无论是间隙原子还是空位都很难形成团簇. PKA能量增大时, 单个缺陷仍占总缺陷数的很大一部分比例, 而由图9可知, 与间隙原子团簇相比, 虽然空位团簇大小(即一个空位团簇中包含空位的个数)为4个或小于4个的相对少, 但其更易形成大团簇, 形成空位个数大于5的团簇, 甚至形成一个空位个数为12的大团簇. 有趣的是, 对于W的空位团簇的研究结果有很大分歧, 文献[3]在PKA能量为20.0 keV, 级联进行5 ps时出现空位团簇, 但在30 ps时团簇又消失了; 质子辐照W的研究结果[9]表明, W的空位是独

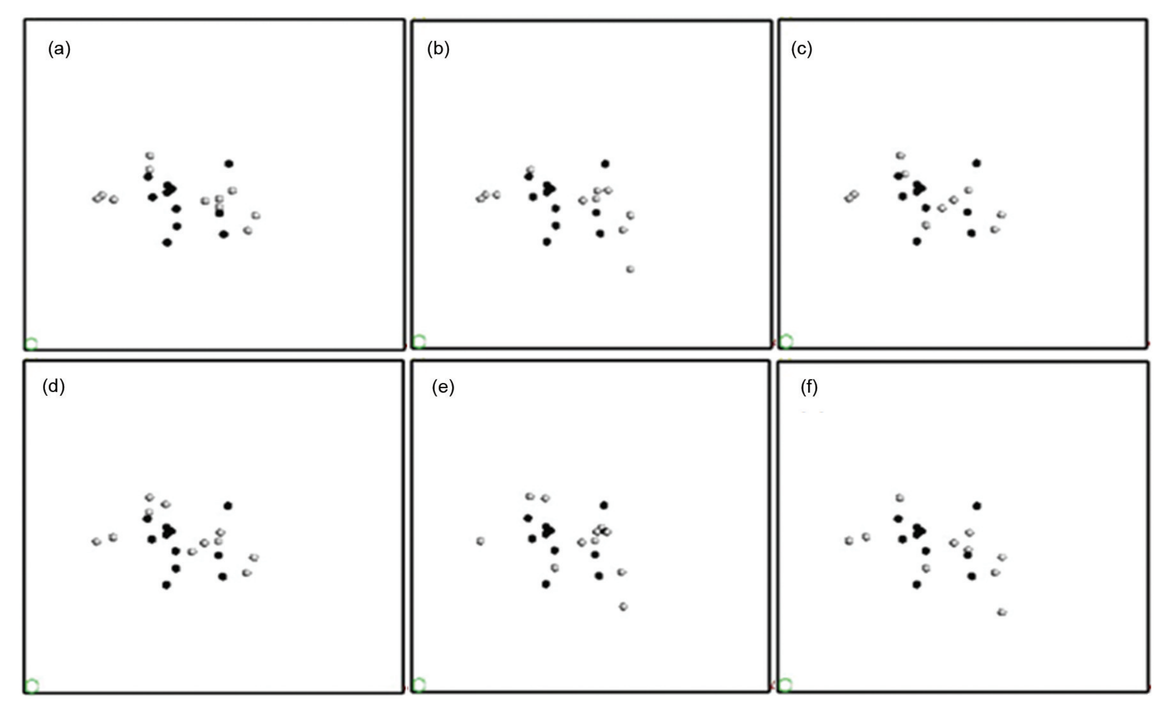


图8 900 K下PKA能量为15.0 keV时稳定阶段点缺陷(间隙原子和空位)随时间演化

Fig.8 Evolution of point defects during steady stage at 900 K with PKA energy 15.0 keV at 20.52 ps (a), 25.90 ps (b), 28.83 ps (c), 31.76 ps (d), 34.70 ps (e) and 40.72 ps (f) (Black balls represent the vacancies and white balls the interstitials)

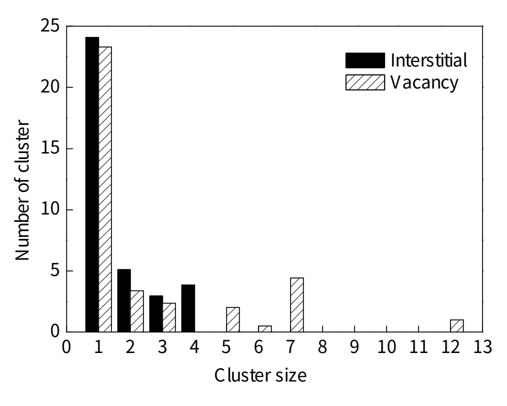


图9 100 K下PKA能量为25.0 keV时团簇大小(每个团簇中包含缺陷的个数)与团簇个数的关系

Fig.9 Relationship of cluster size (the number of defects in each cluster) and number with PKA energy 25.0 keV at 100 K

立的, PKA能量为30.0 keV时仍没有空位团簇生成; 但文献[22]研究得出, 10.0 keV的PKA能量就能导致大的空位团簇生成. 所以, 关于W辐照下空位团簇问题还需深入研究.

2.6 离位阈能 E_d

实验和模拟都对W的E_d做了相应的研究, 但结果差别很大. 并且实验中只可以测量到缺陷形成的继发效应(电阻或位错环), 因此真实E_d很难通过实验方法测得. 分子动力学模拟是一种计算E_d的理想方法, 它可以直接"控制"特定原子在晶格特定方向上的单个位移事件, 不受其他事件的影响.

图10为在[100], [110]和[111] 3个方向, 温度为100, 500和900 K的条件下对W的E_d计算结果, 图中还引用其他学者的研究工作[7,8,19,28,29]作为比较. 可以看出, 本工作模拟结果基本在先前研究范围之内, 在100, 500和900 K下的E_d的平均值(3个方向取平均值)分别为62.17, 62.77和59.47 eV. 可见, E_d随温度的变化幅度不大, 到900 K时有略微下降; 但从单个方向上看, 密排[111]方向的E_d随温度升高而略微上升, [100]和[110]方向的E_d略微降低.

E_d随温度升高而上升可能是由于以下原因: 体系中缺陷的产生主要是由于级联碰撞链以及碰撞后容易在密排方向产生的RCS. 高温加剧了体系中原子的热振动, 使RCS长度变短, 缩短了空位和间隙原子的平均分离距离, 使复合的可能性更高, 同时除RCS以外的间隙原子与空位的回复作用也得到促进, 所以需要更多的能量去产生稳定的Frenkel pairs, 从而使E_d升高. E_d随温度升高而降低则可能是由于高温不仅促进了回复, 同时也给某些间隙原子提供了通过热激活迁移到远离级联中心的位置的机会, 从而导致E_d的降低.

基于以上分析, 温度对E_d的影响是以上2种效

果相反的机制共同作用的结果, 哪个机制占有更大的优势, E_d就会表现出相应的温度效应.

图11为E_d与PKA入射方向关系的盒形图. 可见, PKA入射方向对E_d的影响很大, 这与之前许多研究结果一致. E_d在[110]方向平均值呈现最大值(80.0 eV), 在密排方向[111]平均值呈现最小值(40.0 eV), 密排方向E_d相对小可能是由于沿着此方向的RCS使间隙原子更容易迁移到离空位较远的地方, 产生更多Frenkel pairs. 文献[30]对Cu和文献[31]对V的计算结果也表明, 密排方向的E_d相对其他方向较低; 本工作计算的[100], [110]和[111]方向均为低指数方向, 最大的E_d约为90.0 eV, 文献[32]对Cu的计算结果为低指数方向E_d较低, [100]和[110]方向只有25.0 eV左右, 而高指数方向E_d相对较高, 可达到180.0 eV. 可见, E_d具有一定的各向异性.

可见, 温度(100~900 K)对E_d平均值的影响不太明显, 到900 K时, E_d略微降低3.0 eV左右, 而E_d降低说明产生稳定缺陷所需要的能量变小, 也就是

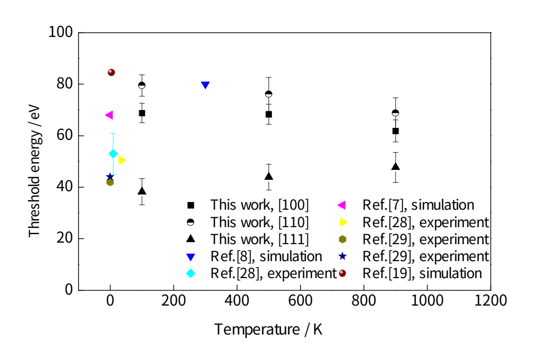
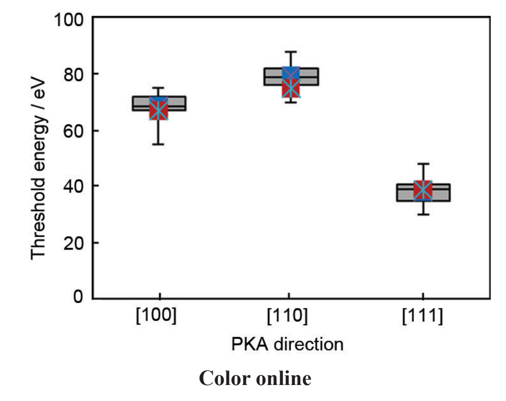


图10 本工作计算的金属W离位阈能E_d与文献报道的比较

Fig.10 Comparisons of threshold energies simulated in this work and other works via simulations or experiments for W



Color online

图11 100 K下不同的PKA方向下的E_d

Fig.11 Threshold energy at 100 K along different crystallographic directions (Blue dots represent average value and red dots represent the values with the frequency of maximum)

说, 在相同的辐照能量(几千电子伏)下, 低E_d的条件会使体系中产生更多缺陷. 这与前文所述的稳定Frenkel pairs数随温度升高呈降低趋势似乎相矛盾; 且E_d受一定的方向影响, 这与前文所述的稳定Frenkel pairs数在PKA能量为3.0 keV时对PKA方向的敏感度小相矛盾. 这是因为, 级联碰撞过程除了原子之间的碰撞移位以外, 相伴的热峰效应不可忽略, 热峰会对点缺陷的回复产生很大影响, 进而影响辐照诱发的稳定Frenkel pairs, MD模拟的级联碰撞产生的Frenkel pairs数远小于NRT预测值, 正是热峰作用的一个典型体现, 而在离位阈能的计算当中, 由于施加的PKA能量很小(几十电子伏), 所以热峰的作用很小, 以至于温度对E_d的综合作用主要体现在使缺陷对分离, 从而导致E_d随温度升高呈略微下降趋势. 方向对E_d的作用则因为晶格排列的周期及疏密不同而呈现出一定的各向异性. 因此, 尽管E_d是影响间隙和空位缺陷形成的重要参数, 但是最终的稳定Frenkel pairs数不能简单的单靠E_d的大小来判断.

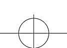
3 结论

(1) 在对bcc-W模拟的PKA能量(1.0~25.0 keV), 模拟温度100~900 K下, 级联峰值阶段缺陷分布大致呈现2种形态: 近球形密集型和非球形相对分散型. 多数情况下, 峰值缺陷呈近球形密集型分布时, 稳定Frenkel pairs数相对较少, 反之呈非球形相对分散型分布时, Frenkel pairs数相对较多.

(2) 稳定Frenkel pairs数在PKA能量为3.0 keV, 温度为100 K时受PKA入射方向(本工作计算[100], [110], [111], [112]和[135])的影响不大, 各方向稳定Frenkel pairs数的浮动最大在10%左右; PKA能量为3.0~15.0 keV下, 稳定Frenkel pairs数随温度(100~900 K)升高而略微降低.

(3) 在PKA (1.0~25.0 keV)作用下, W中缺陷多以单缺陷形式存在, 难于形成缺陷团簇, 团簇分数多数在0.15~0.40之间, 比较而言, 间隙原子团簇分数高于空位团簇分数; 在PKA为25.0 keV时, 单个团簇中缺陷数为4个或少于4的间隙原子团簇要多于空位团簇, 而单个团簇中缺陷数多于5个的团簇只有空位团簇, 空位更倾向于形成大团簇.

(4) 离位阈能受温度影响较小, 在100, 500和900 K下3个方向[100], [110]和[111]的离位阈能都在60.0 eV左右; 离位阈能呈现一定的各向异性, 100 K时在密排方向[111]的E_d最小, 平均值为40.0 eV, 在[110]方向的E_d最大, 平均值为80.0 eV.



参考文献

[1] Bolt H, Barabash V, Federici G, Linke J, Loarte A, Roth J, Sato K. *J Nucl Mater*, 2002; 307: 43

[2] Borovikov V, Tang X Z, Perez D, Bai X M, Uberuaga B P, Voter A F. *J Phys—Condens Matter*, 2013; 25: 035402

[3] Troev T, Nankov N, Yoshiie T. *Nucl Instr Meth*, 2011; 269B: 566

[4] Rieth M, Dudarev S L, Gonzalez de Vicente S M, Aktaa J, Ahlgren T, Antusch S, Palacios T. *J Nucl Mater*, 2013; 432: 482

[5] He X F, Yang W, Fan S. *Acta Phys Sin*, 2009; 58: 8657
(贺新福, 杨 文, 樊 胜. 物理学报, 2009; 58: 8657)

[6] Guinan M W, Kinney J H. *J Nucl Mater*, 1981; 103-104: 1319

[7] Xu Q, Yoshiie T, Huang H C. *Nucl Instr Meth*, 2003; 206B: 123

[8] Li M, Cui J C, Wang J, Hou Q. *J Nucl Mater*, 2013; 433: 17

[9] Caturla M J, Diaz de la Rubia T, Victoria M, Corzine R K, James M R, Greene G A. *J Nucl Mater*, 2001; 296: 90

[10] Troev T, Popov E, Staikov P, Nankov N, Yoshiie T. *Nucl Instr Meth*, 2009; 267B: 535

[11] Park N Y, Kim Y C, Seok H K, Han S H, Cho S, Cha P R. *Nucl Instr Meth*, 2007; 265B: 47

[12] Fu B Q, Xu B, Lai W S, Yuan Y, Xu H Y, Li C, Jia Y Z, Liu W. *J Nucl Mater*, 2013; 441: 24

[13] Biersack J P, Ziegler J F. *Nucl Instrum Methods Phys Res*, 1982; 194: 93

[14] Lee B J, Baskes M I, Kim H, Yang K C. *Phys Rev*, 2001; 64B: 184102

[15] Yao M, Gao X, Zeng W P, Wang X D, Xu H X, Phillpot S R. *Acta Metall Sin*, 2013; 49: 530
(姚 曼, 高 晓, 曾维鹏, 王旭东, 徐海譞, Phillpot S R. 金属学报, 2013; 49: 530)

[16] Xu H X. *From Electronic Structure of Point Defects to Physical Properties of Complex Materials Using Atomic-level Simulations*. Gainesville: University of Florida, 2010: 148

[17] Bacon D J, Calder A F, Gao F, Kapinos V G, Wooding S J. *Nucl Instr Meth*, 1995; 102B: 37

[18] Norgett M J, Robinson M T, Torrens I M. *Nucl Eng Des*, 1975; 33: 50

[19] Björkas C, Nordlund K, Dudarev S. *Nucl Instr Meth*, 2009; 267B: 3204

[20] Bacon D J, Gao F, Osetsky Y N. *J Nucl Mater*, 2000; 276: 1

[21] Wooding S J, Bacon D J, Phythian W J. *Philos Mag*, 1995; 72A: 1261

[22] Fikar J, Schaeublin R. *Nucl Instr Meth*, 2007; 255B: 27

[23] Gao F, Bacon D J, Flewitt P E J, Lewis T A. *J Nucl Mater*, 1997; 249: 77

[24] Derlet P M, Nguyen-Manh D, Dudarev S L. *Phys Rev*, 2007; 76B: 054107

[25] Fikar J, Schaeublin R. *J Nucl Mater*, 2009; 386-388: 97

[26] Nguyen-Manh D, Horsfield A P, Dudarev S L. *Phys Rev*, 2006; 73B: 020101

[27] Bai X M, Voter A F, Hoagland R G, Nastasi M, Uberuaga B P. *Science*, 2010; 327: 1631

[28] Vajda P, Biget M, Lucasson A, Lucasson P. *J Phys*, 1977; 7F: L123

[29] Maury F, Biget M, Vajda P, Lucasson A, Lucasson P. *Radiat Eff Defects Solids*, 1978; 38: 53

[30] Sigle W, Seeger A. *Phys Status Solidi*, 1994; 146A: 57

[31] Zepeda-Ruiz L A, Han S, Srolovitz D J, Car R, Wirth B D. *Phys Rev*, 2003; 67B: 134114

[32] King W E, Benedek R. *Phys Rev*, 1981; 23B: 6335

(责任编辑:肖素红)

